

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/EP05/000369

International filing date: 15 January 2005 (15.01.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: DE  
Number: 10 2004 003 070:7  
Filing date: 21 January 2004 (21.01.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 09 March 2005 (09.03.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

3. 03. 2005

PCT/EP200 5/ 0 0:0 3 6 9

# BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND



## Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

**Aktenzeichen:** 10 2004 003 070.7

**Anmeldetag:** 21. Januar 2004


**Anmelder/Inhaber:** Uhde GmbH, 44141 Dortmund/DE

**Bezeichnung:** Verfahren und Vorrichtung zum Eindüsen von  
Sauerstoff mit radialer Katalysatordurchströmung

**IPC:** B 01 J 8/02

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 23. Februar 2005  
Deutsches Patent- und Markenamt  
Der Präsident  
Im Auftrag

  
Werner

A 9161  
03/00  
EDV-L

PATENT- UND RECHTSANWÄLTE MEINKE, DABRINGHAUS UND PARTNER GbR

ZUGELASSEN BEIM EUROPÄISCHEN PATENTAMT UND GEMEINSCHAFTSMARKENAMT

EUROPEAN PATENT AND TRADEMARK ATTORNEYS\*

PATENTANWÄLTE\*

JULIUS MEINKE, DIPL.-ING. [-2002]  
WALTER DABRINGHAUS, DIPL.-ING.  
JOCHEN MEINKE, DIPL.-ING.

RECHTSANWALT

THOMAS MEINKE

ROSA-LUXEMBURG-STRASSE 18  
44141 DORTMUND

TELEFON (0231) 58 41 90  
TELEFAX (0231) 14 76 70  
info@patent-recht.de

POSTFACH 10 46 45  
44046 DORTMUND, 20. Jan. 2004

DRESDNER BANK AG DTMD, Kto.-Nr. 1 148 047 (BLZ 440 800 50)  
POSTBANK DORTMUND, Kto.-Nr. 542 02-463 (BLZ 440 100 46)

AKTEN-NR. 302/17964 D/S

Anmelderin: Uhde GmbH  
Friedrich-Uhde-Straße 15, 44141 Dortmund

"Verfahren und Vorrichtung zum Eindüsen von  
Sauerstoff mit radialer Katalysatordurchströmung"

"Verfahren und Vorrichtung zum Eindüsen von Sauerstoff mit radialer Katalysatordurchströmung"

Die Erfindung betrifft ein Verfahren und eine Vorrichtung zum Eindüsen von Sauerstoff in einen Synthesereaktor, beispielsweise zur Oxidehydrierung, mit im wesentlichen radialer Durchströmung des Gasgemisches durch eine Katalysatorpackung.

Es gibt eine Reihe von katalytischen Verfahren, bei denen in einem Reaktor dem behandelnden Gas zusätzlich Sauerstoff zugeführt wird, etwa bei der sogenannten Oxidehydrierung von Propan oder Butan, wobei der Sauerstoff in den Oxidehydrierungsreaktoren dem einströmenden Gas vor dem Eintritt in den Katalysator beigemischt wird. Es hat sich gezeigt, daß insbesondere die unregelmäßige Durchmischung des in den Katalysator einströmenden Gases mit Sauerstoff zu unbefriedigenden Ergebnissen führt, sei es, daß es z.B. zur Rußbildung oberhalb des Katalysators kommt oder zur unzureichenden Wertstoffausbeute, etwa der Ausbeute an Propylen.

Hier setzt die Erfindung an, deren Aufgabe es ist, die Ein- und Durchmischung des Sauerstoffes vor dem Eintritt in den Katalysator insbesondere für Oxidehydrierungsverfahren deutlich zu verbessern.

Mit einem Verfahren der eingangs bezeichneten Art wird diese Aufgabe gemäß der Erfindung dadurch gelöst, daß der Sauerstoff in Reinform, als Luft oder vermischt mit Inertgas oder Wasserdampf einem Ringverteilersystem zugeführt wird und aus einer Vielzahl von Austrittsöffnungen im Ringverteiler in einem von der Senkrechten abweichenden schrägen Winkel auf die Katalysatoroberfläche gesprüht wird.

Es hat sich gezeigt, daß durch diese Verfahrensweise eine Durchmischung innerhalb sehr kurzer Zeit  $< 100$  ms erreicht wird, so daß die Reaktionszeit in Zonen mit überstöchiometrischen Sauerstoffkonzentrationen und die nicht katalytischen Reaktionen minimiert werden. Da die Vermischung im freien Raum stattfindet und die sauerstoffreiche Mischung keinen Kontakt mit Wänden bzw. dem Katalysator hat, wird die Schädigung von Werkstoffen durch den eingedüsten Sauerstoff minimiert.

Ausgestaltungen der Erfindung ergeben sich aus den Unteransprüchen.

Je nach Konstruktion des Reaktors kann es zweckmäßig sein, die Eindüsung des Sauerstoffes aus einer zylindrischen Ebene im Inneren des Katalysatorbettes in Richtung auf die Reaktorwand vorzunehmen. Dabei kann nach der erfindungsgemä-

ßen Verfahrensweise die Eindüsung mittels einer Mehrzahl von eine zylindrische innere Axialebene bildenden parallelen Rohren mit den Austrittsöffnungen versehen.

Eine besonders zweckmäßige Ausgestaltung besteht nach der Erfindung darin, daß die Eindüsung des Sauerstoffes in einer Ebene vor der zylindrischen Innenwand des Katalysatorbettes erfolgt, die eine Sauerstoffverweilzeit von  $\leq 1$  Sekunde im Raum vor dem Katalysatorbett sicherstellt.

Zur Lösung der gestellten Aufgabe sieht die Erfindung auch eine Vorrichtung vor, die sich auszeichnet durch einen Ringverteiler mit einer Mehrzahl von eine innere zylindrische Ebene bildenden, mit Austrittsöffnungen versehenen Rohren vor der zylindrischen Innenfläche des Katalysatorbettes, wobei die Austrittsöffnungen zur Abgabe des Sauerstoffes in einem von der Senkrechten abweichenden schrägen Winkel auf die Katalysatorzylinderfläche ausgebildet sind.

In vorteilhafter Ausgestaltung kann vorgesehen sein, daß die Gasaustrittsöffnungen in wechselnder Folge zu benachbarten Austrittsöffnungen eines benachbarten Ringrohres ausgerichtet sind, wobei benachbarte Gasaustrittsöffnungen unterschiedliche Strömungsaustrittsrichtungen aufweisen können.

Eine weitere vorteilhafte Ausgestaltung der Erfindung besteht darin, daß die Gasaustrittsöffnungen als Bohrungen oder Düsen ausgebildet sind.

Zum Stand der Technik seien an dieser Stelle einige Literaturstellen erwähnt. So DE-OS 43 33 372, die ein Herstellungsverfahren von Olefinen aus Methan enthaltenen Gasmischungen offenbart, oder die US-5 935 489, die ein Verfahren und eine Vorrichtung zur Synthesegasherstellung mit partieller Oxidation zeigt oder die US-Patentschriften 2 518 583, 2 809 981 oder 2 954 281. Der US-2 584 391 ist die Eindüsung eines Reaktanden in von der Senkrechten abweichenden Richtungen zu entnehmen, um einen effektiveren Kontakt zwischen festen und gasförmigen Partikel in einem fluidisierten Bett eines Reaktors zu erreichen.

Weitere Merkmale, Einzelheiten und Vorteile der Erfindung ergeben sich aufgrund der nachfolgenden Beschreibung sowie anhand der Zeichnung. Diese zeigt in

Fig. 1 eine stark vereinfachte Darstellung einer Vorrichtung nach der Erfindung,

Fig. 2 eine Detailvergrößerung im Bereich des Katalysators mit angedeuteter Gaszuströmung sowie in

Fig. 3 einen Querschnitt durch den Reaktor im Bereich des Katalysators.

Der in Fig. 1 im Schnitt schematisch dargestellte, allgemein mit 1 bezeichnete Oxireaktor weist ein Gaseintrittsrohr 2 auf, das einen Katalysator 3 zentrisch bis zu einer oberen Abdeckung 10 durchsetzt, wobei im oberen Bereich des Reaktors 1 ein Gasdom 4 ausgebildet ist. Im Gasdom 4 ist ein Ringverteiler 5 für Sauerstoff in Reinform, als Luft oder vermischt mit Inertgas oder Wasserdampf vorgesehen, wobei dieses Ringrohr 5 mit einer Mehrzahl von mit Austrittsöffnungen 6 ausgestatteten, senkrecht nach unten weisenden Rohren 7 ausgerüstet ist. Die Austrittsöffnungen 6 sind so angeordnet, daß der jeweilige Gasstrahl in einem von der Senkrechten abweichenden Winkel auf die zylindrische innere Katalysatoroberfläche auftrifft, was in den Fig. 2 und 3 durch kleine Pfeile dargestellt ist.

In Fig. 1 ist der  $O_2$ - bzw. Gaseintritt in den Ringverteiler 5 durch Pfeile 8 angedeutet, der Gasaustritt aus dem Reaktor mit einem Pfeil 9.

Der Strömungsweg des den Reaktor durchströmenden Gases mit dem zusätzlichen Sauerstoff ist in Fig. 2 mit einem gestrichelten Pfeil 11 angedeutet.



Natürlich ist das beschriebene Ausführungsbeispiel der Erfindung noch in vielfacher Hinsicht abzuändern, ohne den Grundgedanken zu verlassen, insbesondere können die Auftrittswinkel je nach Bauart des Reaktors auch in anderer als der dargestellten Weise gewählt werden.

Patentansprüche:

1. Verfahren zum Eindüsen von Sauerstoff in einen Synthesereaktor, beispielsweise zur Oxidehydrierung, mit im wesentlichen radialer Durchströmung des Gasgemisches durch eine Katalysatorpackung,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß der Sauerstoff in Reinform, als Luft oder vermischt mit Inertgas oder Wasserdampf einem Ringverteilersystem zugeführt wird und aus einer Vielzahl von Austrittsöffnungen im Ringverteilersystem in einem von der Senkrechten abweichenden schrägen Winkel auf die Katalysatoroberfläche aufgesprüht wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß die Eindüsung des Sauerstoffes aus einer zylindrischen Ebene im Inneren des Katalysatorbettes in Richtung auf die Reaktorwand vorgenommen wird.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß die Eindüsung mittels einer Mehrzahl von eine zylindrische innere Axialebene bildenden parallelen Rohren mit den Austrittsöffnungen vorgenommen wird.

4. Verfahren nach einem der vorangehenden Ansprüche,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß die Eindüsung des Sauerstoffes in einer Ebene vor der  
zylindrischen Innenwand des Katalysatorbettes erfolgt, die  
eine Sauerstoffverweilzeit von  $\leq 1$  Sekunde im Raum vor dem  
Katalysatorbett sicherstellt.
5. Vorrichtung zum Eindüsen von Sauerstoff in einen Synthe-  
sereaktor, beispielsweise zur Oxidehydrierung, mit im we-  
sentlichen radialer Durchströmung des Gasgemisches durch  
eine Katalysatorpackung, insbesondere zur Durchführung des  
Verfahrens nach einem der vorangehenden Ansprüche, gekenn-  
zeichnet durch  
einen Ringverteiler mit einer Mehrzahl von eine innere zy-  
lindrische Ebene bildenden, mit Austrittsöffnungen (6) ver-  
sehenen Rohren (7) vor der zylindrischen Innenfläche des  
Katalysatorbettes, wobei die Austrittsöffnungen (6) zur  
Abgabe des Sauerstoffes in einem von der Senkrechten abwei-  
chenden schrägen Winkel auf die zylindrische Katalysatoro-  
berfläche ausgebildet sind.
6. Vorrichtung nach Anspruch 5 oder einem der folgenden  
Ansprüche,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß die Gasaustrittsöffnungen (6) in wechselnder Folge zu

benachbarten Austrittsöffnungen eines benachbarten Ringrohres ausgerichtet sind.

7. Vorrichtung nach Anspruch 5 oder 6,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß benachbarte Gasaustrittsöffnungen (6) unterschiedliche Strömungsausstrittsrichtungen aufweisen.
8. Vorrichtung nach Anspruch 5 oder einem der folgenden,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß die Gasaustrittsöffnungen (6) als Bohrungen oder Düsen ausgebildet sind.

Zusammenfassung:

Mit einem Verfahren und einer Vorrichtung zum Eindüsen von Sauerstoff in einen Synthesereaktor, beispielsweise zur Oxidehydrierung, mit im wesentlichen radialer Durchströmung des Gasgemisches durch eine Katalysatorpackung, soll die Ein- und Durchmischung des Sauerstoffes vor dem Eintritt in den Katalysator insbesondere für Oxidehydrierungsverfahren deutlich verbessert werden.

Dies wird dadurch erreicht, daß der Sauerstoff in Reinform, als Luft oder vermischt mit Inertgas oder Wasserdampf einem Ringverteilersystem zugeführt wird und aus einer Vielzahl von Austrittsöffnungen im Ringverteilersystem in einem von der Senkrechten abweichenden schrägen Winkel auf die Katalysatoroberfläche gesprüht wird.

Hierzu zu veröffentlichende Zeichnung: Fig. 2.

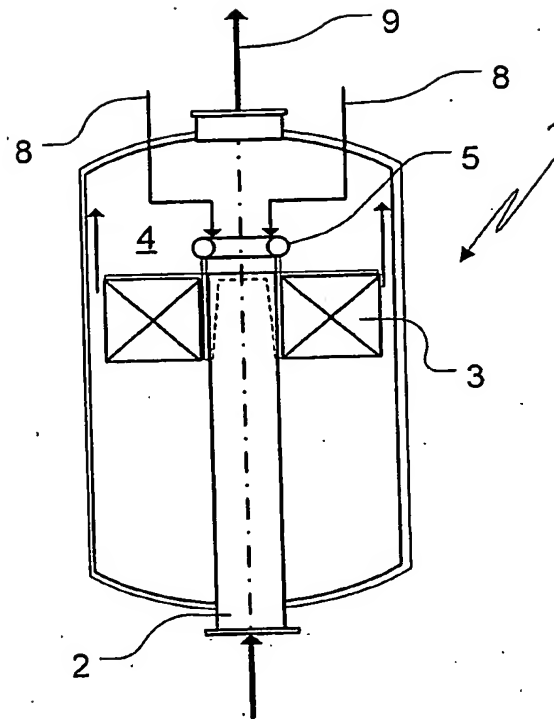


Fig. 1

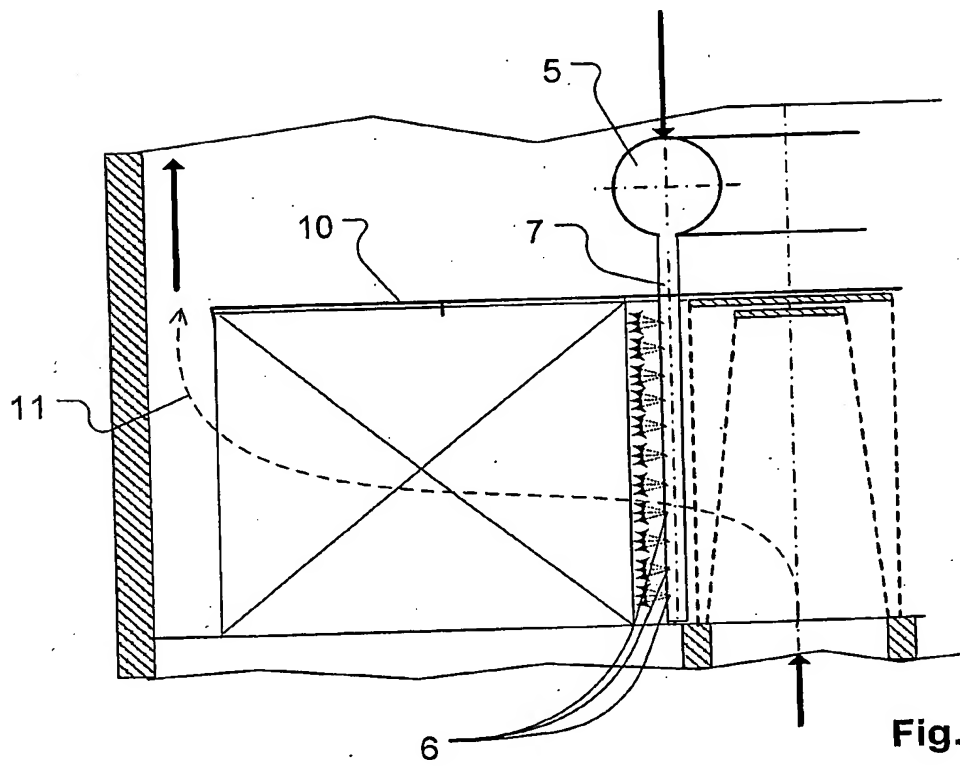
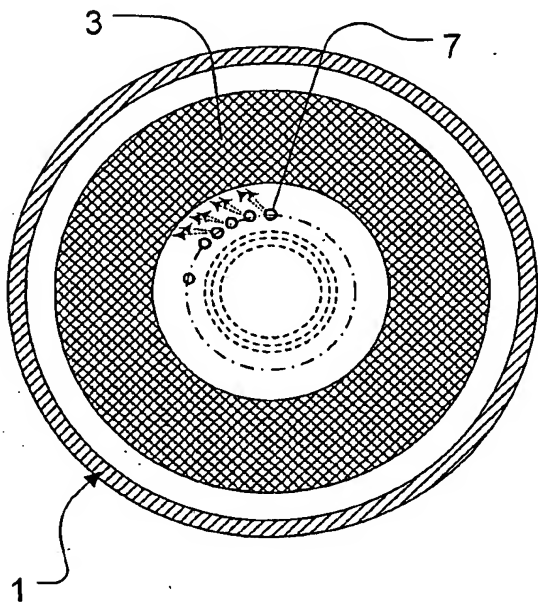
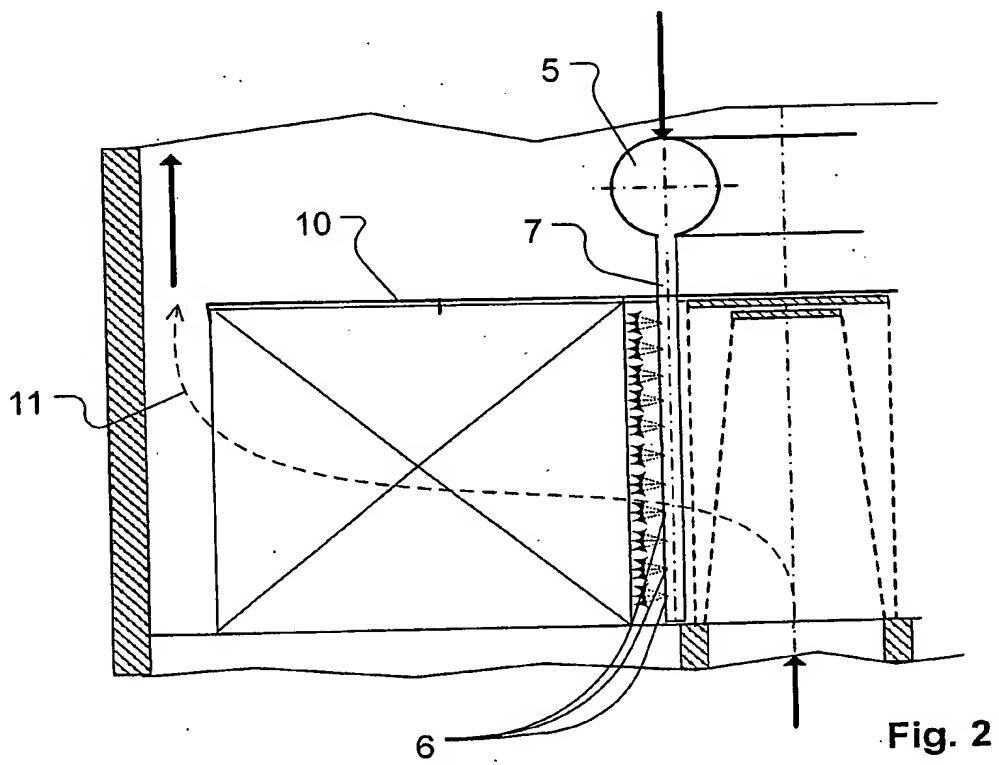


Fig. 2



**Fig. 3**





From the INTERNATIONAL BUREAU

**PCT**NOTIFICATION CONCERNING  
SUBMISSION OR TRANSMITTAL  
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

To:

DABRINGHAUS, Walter  
Rosa-Luxemburg-Strasse 18  
44141 Dortmund  
ALLEMAGNE

Date of mailing (day/month/year) 06 April 2005 (06.04.2005)	<b>IMPORTANT NOTIFICATION</b>
Applicant's or agent's file reference 302I/18485 d/s	
International application No. PCT/EP05/000369	International filing date (day/month/year) 15 January 2005 (15.01.2005)
International publication date (day/month/year)	Priority date (day/month/year) 21 January 2004 (21.01.2004)
Applicant UHDE GMBH et al	

- By means of this Form, which replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents, the applicant is hereby notified of the date of receipt by the International Bureau of the priority document(s) relating to all earlier application(s) whose priority is claimed. Unless otherwise indicated by the letters "NR", in the right-hand column or by an asterisk appearing next to a date of receipt, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- (If applicable)* The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which, on the date of mailing of this Form, had not yet been received by the International Bureau under Rule 17.1(a) or (b). Where, under Rule 17.1(a), the priority document must be submitted by the applicant to the receiving Office or the International Bureau, but the applicant fails to submit the priority document within the applicable time limit under that Rule, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
- (If applicable)* An asterisk (\*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b) (the priority document was received after the time limit prescribed in Rule 17.1(a) or the request to prepare and transmit the priority document was submitted to the receiving Office after the applicable time limit under Rule 17.1(b)). Even though the priority document was not furnished in compliance with Rule 17.1(a) or (b), the International Bureau will nevertheless transmit a copy of the document to the designated Offices, for their consideration. In case such a copy is not accepted by the designated Office as the priority document, Rule 17.1(c) provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
21 January 2004 (21.01.2004)	10 2004 003 070.7	DE	09 March 2005 (09.03.2005)

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer  <b>Poupel Sylvie</b>
Facsimile No. +41 22 740 14 35	Facsimile No. +41 22 338 70 80 Telephone No. +41 22 338 8094